

**This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

**Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.**

**Defects in the images may include (but are not limited to):**

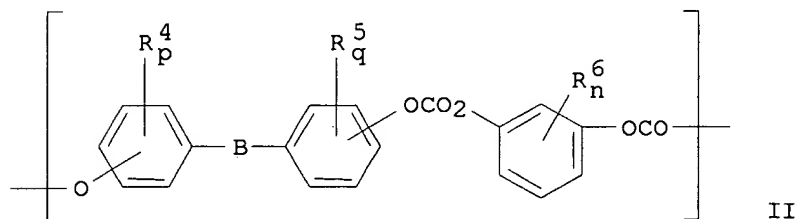
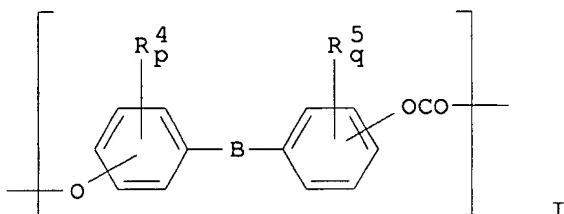
- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

L7 ANSWER 131 OF 190 CA COPYRIGHT 2003 ACS  
 AN 123:342293 CA  
 TI Fire-resistant **polycarbonate** compositions  
 IN Fujiguchi, Tomohide; Saito, Akihiro; Itoi, Hideyuki  
 PA Ge Plastics Japan Ltd, Japan  
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 9 pp.  
 CODEN: JKXXAF  
 DT Patent  
 LA Japanese  
 IC ICM C08L025-12  
 ICS C08K005-521; C08L055-02; **C08L069-00**; C08L083-04  
 CC 37-6 (Plastics Manufacture and Processing)  
 FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 07196871	A2	19950801	JP 1993-353530	1993.12.28
PRAI	JP 1993-353530		19931228		
GI					



AB Title compns. comprise (A) 1-99 parts copolycarbonates comprising 10-98 mol% units I and 2-90 mol% II [R<sub>4</sub>-R<sub>5</sub> = halo, hydrocarbyl; B = CR<sub>1</sub>R<sub>2</sub>, C(:R<sub>3</sub>), O, S, SO, SO<sub>2</sub>; R<sub>1</sub>-R<sub>2</sub> = H, hydrocarbyl; R<sub>3</sub> = bivalent hydrocarbyl; R<sub>6</sub> = C<sub>1</sub>-10 (halogenated) hydrocarbyl, halo; p, q, n = 0-4] (B) 1-99 parts copolymers comprising rubber polymers, arom. vinyl monomers, and vinyl cyanides, and/or copolymers comprising arom. vinyl monomers and vinyl cyanides, (C) 1-20 phr phosphate esters, and (D) 0.1-10 phr polyorganosiloxanes. Thus, a copolycarbonate (prepd. from bisphenol A 0.22, resorcinol 0.22, and di-Ph carbonate 0.44 kmol) 69, UX 050 8, SR  
 30B 12, CR 733S 11, TSF-437 1.5, and Teflon 30J 0.3 part were melt kneaded, pelletized, and injection molded to give test pieces with notched Izod impact strength 70 kg-cm/cm, UL-94/5V fire resistance rating 5VA, and CSA test pass.  
 ST **polycarbonate** siloxane blend fire resistance; ABS blend **polycarbonate** impact resistance; phosphate fireproofing **polycarbonate** ABS blend

IT Fire-resistant materials  
Impact-resistant materials  
(**polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT **Polycarbonates**, preparation  
RL: IMF (Industrial manufacture); POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); PREP (Preparation); USES (Uses)  
(**polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT Rubber, synthetic  
RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)  
(acrylic, acrylonitrile- and styrene-grafted, **polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT **9005-12-3**, TSF 437  
RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)  
(TSF 437; **polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT 9002-84-0, Teflon 30J  
RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)  
(drop inhibitor; **polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT 57583-54-7, CR 733S  
RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)  
(fireproofing agents; **polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT 147041-56-3P, Bisphenol A-diphenyl carbonate-resorcin copolymer  
RL: IMF (Industrial manufacture); POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); PREP (Preparation); USES (Uses)  
(**polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

IT 100-42-5D, Styrene, polymers with acrylonitrile and chlorinated polyethylene 107-13-1D, Acrylonitrile, polymers with chlorinated polyethylene and styrene 9002-88-4D, Polyethylene, chlorinated, polymers  
with acrylonitrile and styrene 9003-54-7, SR 30B 9003-56-9, UX 050  
32505-24-1, Acrylonitrile-ethylene-propylene-styrene copolymer  
RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)  
(**polycarbonate** compns. with good fire and impact resistance)

L8 ANSWER 1 OF 1 REGISTRY COPYRIGHT 2003 ACS

RN 9005-12-3 REGISTRY

CN Poly[oxy(methylphenylsilylene)] (8CI, 9CI) (CA INDEX NAME)

OTHER NAMES:

CN 2,4,6-Trimethyl-2,4,6-triphenylcyclotrisiloxane homopolymer, sru

CN Allied Signal GR 720

CN ASI 50

CN Baysilone PL

CN CP-Sil 8

CN DC 6-2230

CN DC 710

CN Dow Corning 1-0468

CN Dow Corning 6-2230

CN Dow Corning 710

CN F 5

CN F 5 (silicone)

CN FZ 209

CN GR 720

CN H 44

CN K 9

CN K 9 (siloxane)

CN KF 255

CN KF 50

CN KF 50-100CS

CN KF 50-500CS

CN KF 56H5000

CN KO 08

CN KSG 8

CN Lukosil 901

CN M 9080

CN M 9110

CN Methyl phenyl polysiloxane

CN Methyl phenyl siloxane

CN Methylphenylsilanediol homopolymer, sru

CN Methylphenylsiloxane polymer, sru

CN Methylphenylsiloxane, sru

CN Morkote S 101

CN MS 20000

CN NUC Silicone FZ 209

CN Phenyl Dimethicone

CN Poly(methylphenylsiloxane), sru

CN Q 6-2230

CN Rhodosil 11309

CN SF 1265

CN SF 557

CN SH 702-45CS

CN SH 805

CN SH 840

CN SH 8627

CN Silres MP 42E

CN SR 112

CN SR 125

CN SR 2414

CN SY 550

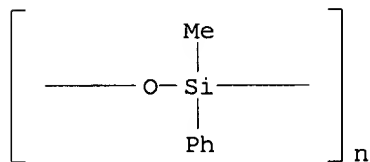
ADDITIONAL NAMES NOT AVAILABLE IN THIS FORMAT - Use FCN, FIDE, or ALL for  
DISPLAY

DR 32029-27-9, 39346-94-6, 187412-92-6

MF (C7 H8 O Si)<sub>n</sub>

CI PMS, COM  
PCT Polyother, Polyother only  
LC STN Files: BIOSIS, CA, CAPLUS, CHEMCATS, CSCHEM, MEDLINE, MSDS-OHS,  
TOXCENTER, USPAT2, USPATFULL, VTB

\*\*RELATED POLYMERS AVAILABLE WITH POLYLINK\*\*



829 REFERENCES IN FILE CA (1962 TO DATE)  
37 REFERENCES TO NON-SPECIFIC DERIVATIVES IN FILE CA  
832 REFERENCES IN FILE CAPLUS (1962 TO DATE)

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] this invention relates to the resin constituent containing the resin of a polycarbonate system by which flameproofing was carried out.

[0002]

[Description of the Prior Art] Although the aromatic polycarbonate system resin is used abundantly as engineering plastics because [ the / of physical properties ] it was outstanding, since fire-retardancy is insufficient, various attempts are made the sake on a fire-resistant disposition ]. The constituent which blended the phosphoric ester system compound with aromatic polycarbonate resin and the ABS system resin especially has high fire retardancy. That is, the results which were excellent in UL94 combustion tests V0, V1, and V2 are obtained. This fire-resistant evaluation examination is length 127 mm and width-of-face 12.7 mm. It is carried out using a bar-like sample. However, it sets to the corner guard examination of 5V examination of UL94, and such a resin constituent is a corner guard (152x152 mm). A fenestrate occurs that thickness is under 2.8 mm, and it becomes a rejection at the examination of 5VAs. It is a corner guard (100x150 mm) similarly. Also in the examination A of CSA specification C22.2 No.0.6-M1982 to be used, the thickness of a sample becomes a rejection for a fenestrate etc. for it to be under 2.8 mm.

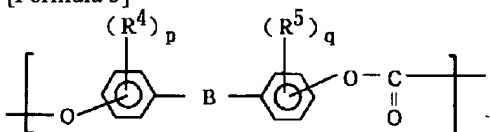
[0003] Moreover, the resin constituent containing aromatic polycarbonate resin and a ABS system resin is excellent in physical properties, such as shock resistance and a dimensional accuracy, begins the interior and sheathing of an automobile, and is widely adopted as housing of OA equipment etc. However, especially, in the housing use of various devices, in order to reply to the cost cut of a device and the request of lightweight-izing in recent years, a thinning inclination is becoming strong. Therefore, in housing with thin thickness, a resin constituent of the aromatic polycarbonate system which passes 5V examination and CSA examination of UL94 is desired.

[0004] Then, even if this invention is fabricated by thickness thinner than 2.8 mm, it aims at offering the resin constituent of the polycarbonate system which has outstanding fire retardancy which serves as 5VA success by the 5V examination of UL94, and passes a CSA examination.

[0005]

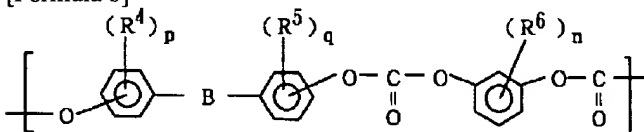
[Means for Solving the Problem] The flame-retardant-resin constituent of this invention is (A) following formula (\*\* 5):. [0006]

[Formula 5]



: And the following formula (\*\* 6) [0007]

[Formula 6]



It is here. the inside of the above-mentioned formula, R4, and R5 -- respectively -- becoming independent -- a halogen atom or a monovalent hydrocarbon group -- it is -- B -(R1-) C-(R2)- [ -- R1 And] whose R2 is a hydrogen atom or a univalent hydrocarbon group independently, respectively, - C(=R3)- [R3 is Divalent Hydrocarbon Group Here], - It is O-, -S-, -SO-, or -SO2-, and is R6. It is Hydrocarbon Group, Its Halogenide, or Halogen Atom of Carbon Numbers 1-10. It has the structural unit shown. p, q, and n -- respectively -- becoming independent -- the integer of 0-4 -- it is -- and the amount of the structural unit of the above (\*\* 6) -- and (\*\* 5) (\*\* 6) a copolymerization polycarbonate, or this and the polycarbonate system resin which occupy 2-90-mol% of the total quantity of a structural unit 1 - 99 weight section -- They are (B) (b-1) and (a) to a row. A gum polymer and (b) An aromatic vinyl monomer component and (c) A vinylcyanide monomer component The copolymer included as a constituent of a copolymer, and/or (b-2) (b) An aromatic vinyl monomer component and (c) A vinylcyanide monomer component It is (C)

phosphoric ester system compound to a total of 100 weights sections of 99 - 1 weight section implication, (A), and (B) about the copolymer included as a constituent of a copolymer. 1 - 20 weight section and (D) polyorganosiloxane It is characterized by including 0.1 - 10 weight section.

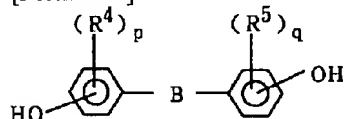
[0008] In this invention, if the feature is in the place which combined a component (C) and (D) with the resin of (A) and (B) and at least one of (C) and (the D) is missing, both the 5V examination of UL94 and a CSA examination cannot be passed by the light-gage corner guard.

[0009] In this invention, a component (A) is a copolymerization polycarbonate, or this above-mentioned and the above-mentioned polycarbonate system resin.

[0010] The copolymerization polycarbonate used by this invention needs to have the above-mentioned formula (\*\* 5) and (\*\* 6) the composition unit shown. First, the composition unit shown by (\*\* 5) consists of a diphenol component and a carbonate component. The diphenol which can be used in order to introduce a diphenol component is shown in the following formula (\*\* 7).

[0011]

[Formula 7]



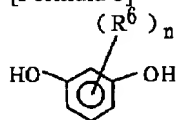
R4, R5, and B, p and q are having been shown previously and homonymy among the above-mentioned formula.

[0012] In this invention as an effective diphenol For example, screw (4-hydroxyphenyl) methane, 1, and 1-screw (4-hydroxyphenyl) ethane, 2 and 2-screw (4-hydroxyphenyl) propane (the so-called bisphenol A), 2 and 2-screw (4-hydroxyphenyl) butane, 2, and 2-screw (4-hydroxyphenyl) octane, Screw (4-hydroxyphenyl) phenylmethane, 2, and 2-screw (4-hydroxy-1-methylphenyl) propane, 1 and 1-screw (4-hydroxy-t-butylphenyl) propane, Screw (hydroxy aryl) alkanes, such as 2 and 2-screw (4-hydroxy-3-BUROMO phenyl) propane; 1 and 1-screw (4-hydroxyphenyl) cyclopentane, Screw (hydroxy aryl) cycloalkanes, such as 1 and 1-screw (4-hydroxyphenyl) cyclohexane; 4 4' - Dihydroxy diphenyl ether, 4 4' - Dihydroxy aryl ether, such as dihydroxy -3 and the 3'-dimethylphenyl ether; 4 4' - Dihydroxydiphenyl sulfide, 4 4' - Dihydroxy diaryl sulfides, such as dihydroxy -3 and a 3'-dimethyl diphenyl sulfide; 4 4' - Dihydroxydiphenyl sulfoxide, 4 4' - Dihydroxy diaryl sulfoxides, such as dihydroxy -3 and a 3'-dimethyl diphenyl sulfoxide; 4 4' - Dihydroxy diphenylsulfone, Although dihydroxy diaryl sulfones, such as 4, 4'-dihydroxy -3, and 3'-dimethyl diphenylsulfone, are mentioned, it is not limited to these. these -- one sort -- or two or more sorts can be used, combining Especially among these, 2 and 2-screw (4-hydroxyphenyl) propane is desirable.

[0013] Moreover, as a precursor for introducing a carbonate component, halogenation carbonyl compounds, such as carbonic acid diesters, such as diphenyl carbonate, ditolyl carbonate, screw (chlorophenyl) carbonate, m-cresyl carbonate, dinaphthyl carbonate, screw (diphenyl) carbonate, diethyl carbonate, dimethyl carbonate, dibutyl carbonate, and dicyclohexyl carbonate, and a phosgene, etc. are mentioned, for example. these -- one sort -- or two or more sorts can be used, combining Especially diphenyl carbonate is desirable.

[0014] Next, the structural unit shown by the above-mentioned formula (\*\* 6) changes from a carbonate component to a diphenol component, a resorcinol, and/or a substitution resorcinol component row. The diphenol same with having described above can be used about introduction of a diphenol component. Moreover, as a carbonate component, the above-mentioned carbonic acid diester or the above-mentioned phosgene can be used. For introduction of a resorcinol and/or a substitution resorcinol component, it is following formula (\*\* 8):. [0015]

[Formula 8]



the compound shown by (here, R6 and n are the above and homonymy) -- one sort -- or two or more sorts can be used, combining As such a compound, substitution resorcinols, such as a resorcinol and 3-methyl resorcinol, 3-ethyl resorcinol, 3-propyl resorcinol, 3-butyl resorcinol, a 3-t-butyl resorcinol, 3-phenyl resorcinol, 3-cumyl resorcinol, 2, 3 and 4, 6-tetrafluoro resorcinol, 2, 3 and 4, and a 6-tetrabromo resorcinol, are mentioned, for example. A resorcinol is [ especially among these ] desirable.

[0016] It has two sorts of above-mentioned composition units shown by the copolymerization polycarbonate (\*\* 6 (\*\* 5)) at a following rate. the amount of the composition unit shown by (\*\* 6), and (\*\* 5) (\*\* 6) namely, 2 - 90-mol% of the total quantity -- it is 2 - 40-mol % preferably Since the fall of a glass transition temperature (Tg) is inadequate if there are few amounts of (\*\* 6) than two-mol %, the fluid improvement effect is not seen. Moreover, if [ than 90 mol % ] more, the outstanding physical properties equivalent to the conventional polycarbonate, for example, a mechanical strength, thermal resistance, etc. will not be obtained.

[0017] the weight average molecular weight of a copolymerization polycarbonate -- usually -- 10,000-100,000 -- it is 18,000-40,000 preferably With weight average molecular weight here, it is measured by GPC (gel permeation chromatography) using the polystyrene rectified for polycarbonates. (That whose intrinsic viscosity measured at 25 degrees C is 0.35 - 0.65 dl/g is desirable among methylene chloride again.) A copolymerization polycarbonate can be manufactured by the manufacture method

of a well-known polycarbonate, for example, the interfacial polymerization using a phosgene, the melting polymerization method, etc. Since especially a melting polymerization method does not use a phosgene, a methylene chloride, etc. which are a toxic substance, it is desirable on environmental hygiene.

[0018] Conditions, such as temperature in the case of melting polymerization reaction and a pressure, are arbitrary, and can use the conditions of well-known common use. concrete -- desirable -- 80-250 °C -- more -- desirable -- 100-230 °C -- especially -- desirable -- It is the temperature of 120 - 190 °C, and the compound shown by the diphenol and the above-mentioned formula (\*\* 8) and a carbonic acid diester are made to react under an ordinary pressure preferably especially for 0 to 3 hours for 0 to 4 hours for 0 to 5 hours. Subsequently, reaction temperature is raised making the system of reaction reduced pressure, the reaction of the compound shown by the diphenol and the above-mentioned formula (\*\* 8) and a carbonic acid diester is performed, and, finally it is under reduced pressure of 1 or less mmHg more preferably 5 or less mmHg. It is the temperature of 240 - 320 °C, and it is desirable to perform the reaction of the compound shown by the diphenol and the above-mentioned formula (\*\* 8) and a carbonic acid diester.

[0019] Continuous system may perform the above polycondensation reactions and they may be performed by the batch type. moreover -- even if the reactor used in case the above-mentioned reaction is performed is a tub type and it is a juxtaductal type -- a column -- you may be type

[0020] moreover, the structural unit (\*\* 6) in the copolymerization polycarbonate which is obtained according to this melting polymerization method -- it is the rate which exceeds 90-mol% of the sum total, namely, even if it uses a resorcinol and/or a substitution resorcinol to 100 mols of diphenols in an amount which exceeds 90 mols, compared with other methods, for example, interfacial polymerization etc., the hue, waterproof, and heat-resistant outstanding copolymerization polycarbonate is obtained for and (\*\* 5) (\*\* 6)

[0021] it is moreover, like [ although a copolymerization polycarbonate has sufficient shock-resistant intensity even if the end is a phenol ] p-t-butylphenol, an isononyl phenol, an iso octyl phenol, m- or p-cumyl phenol (preferably p-cumyl phenol), and a chromanyl compound, for example, a chroman, -- more -- bulk -- if a high end group is introduced, the copolymerization polycarbonate in which low-temperature shock nature was more excellent can be obtained

[0022] A component (A) can contain a polycarbonate system resin arbitrarily with the above-mentioned copolymerization polycarbonate. The polycarbonate system resin used in this invention is the aromatic polycarbonate made by the well-known phosgene method or well-known scorification (for example, refer to JP,63-215763,A and JP,2-124934,A).

[0023] When a component (A) contains both a copolymerization polycarbonate and a polycarbonate system resin, both rate of a compounding ratio is arbitrary.

[0024] Next, a component (B) is described. (B) a component -- and/or (b-1) (b-2) -- it is . (b-1) -- (a) A gum polymer and (b) an aromatic vinyl monomer component -- and -- It is a copolymer containing (c) vinylcyanide monomer component. [ first, ]

[0025] (a) used by this invention As a gum polymer The random copolymer and block copolymer of a polybutadiene, a polyisoprene, and a styrene-butadiene, The hydrogenation object of this block copolymer, an acrylonitrile-butadiene copolymer, The random copolymer and block copolymer of diene system rubber, such as a butadiene-isoprene copolymer, and an ethylene-propylene, The random copolymer of an ethylene-butene and a block copolymer, the copolymer of ethylene and an alpha olefin, A copolymer with ethylene-unsaturation carboxylates, such as ethylene-methacrylate and ethylene-butyl acrylate Acrylic elastic polymers, such as an acrylic-ester-butadiene copolymer, for example, a butyl acrylate-butadiene copolymer etc. The copolymer of ethylene, such as ethylene-vinyl acetate, and a fatty-acid vinyl, Ethylene-propylene nonconjugated diene terpolymers, such as an ethylene-propylene-ethylidene norbornene copolymer and an ethylene-propylene-hexadiene copolymer, A butylene-isoprene copolymer, a chlorinated polyethylene, etc. are mentioned and these are used by one sort or two sorts or more. As a desirable gum polymer, it is an ethylene propylene rubber, an ethylene-propylene nonconjugated diene terpolymer, diene system rubber, and an acrylic elastic polymer, and is a polybutadiene and a styrene-butadiene copolymer especially preferably, and, as for the styrene content in this styrene-butadiene copolymer, it is desirable that it is 50 or less % of the weight.

[0026] it is used by this invention as (b) vinylcyanide monomer component -- acrylonitrile, a methacrylonitrile, etc. -- it can mention -- these -- one sort -- or two or more sorts are used

[0027] it is used by this invention as (c) aromatic vinyl monomer component -- styrene, an alpha methyl styrene, o-, and m- Or p-methyl styrene, a vinyl xylene, monochlorostyrene, dichloro styrene, a monochrome bromostyrene, dibromo styrene, fluoro styrene, and p-tert- butyl styrene, ethyl styrene, vinyl naphthalene, etc. -- it can mention -- these -- one sort -- or two or more sorts are used They are styrene and an alpha methyl styrene preferably.

[0028] The component (a) of the above [ 1 / (b-1) / of the component (B) in this invention ], and (b) It reaches and is (d) besides (c). The monomer in which these components and copolymerization are possible can be used in the range which does not spoil the purpose of this invention. As a monomer in which such copolymerization is possible, alpha, such as an acrylic acid and a methacrylic acid, beta-unsaturated carboxylic acid, Methyl (meta) acrylate, ethyl (meta) acrylate, propyl (meta) acrylate, alpha, such as butyl (meta) acrylate, 2-ethyl (meta) acrylate, and 2-ethylhexyl methacrylate, and beta-unsaturation carboxylates; A maleic anhydride, alpha, such as itaconic acid anhydride, and beta-unsaturation dicarboxylic-acid anhydrides; Maleimide, Imido compound [ of alpha, such as N-methyl maleimide N-ethylmaleimide, N-phenyl maleimide, and N;o-chlorophenyl maleimide, and beta-unsaturation dicarboxylic acid ]; etc. can be mentioned, and these monomers are used by one sort or two sorts or more.

[0029] a component (b-1) -- setting -- each component (a) and (b) And (c) Especially a limit does not have a composition ratio and each component is blended according to a use.

[0030] As a copolymer of a component (b-1), it is (a). The graft copolymers other components carried out [ graft copolymers etc.



] graft copolymerization to the bottom of existence of a gum polymer are ABS plastics (acrylonitrile-butadiene-styrene copolymer), the AES resin (acrylonitrile-ethylene-propylene-styrene copolymer), a ACS resin (acrylonitrile-chlorinated-polyethylene-styrene copolymer), and an acrylonitrile acrylic styrene resin (acrylonitrile-acrylic elastic polymer-styrene copolymer) desirable still more preferably.

[0031] About the manufacturing method of the copolymer of a component (b-1), there is especially no limit and well-known methods, such as a bulk polymerization, solution polymerization, a massive suspension polymerization, a suspension polymerization, and an emulsion polymerization, are usually used. Moreover, it is also possible to obtain a component (b-1) by blending the resin copolymerized separately.

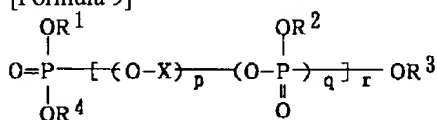
[0032] Next, (b-2) of a component (B) is (b). An aromatic vinyl monomer component and (c) It is a copolymer containing a vinylcyanide monomer component. As these examples, it sets to above (b-1), and is (b). And (c) It carries out and what was shown is mentioned, and especially these composition ratios are not restricted but are chosen according to a use. As desirable (b-2), it is a SAN resin (styrene acrylonitrile copolymer). Moreover, the method same also about the manufacturing method of the copolymer of a component (b-2) as above (b-1) can be used.

[0033] As a desirable component (B), it is (a). It is the blend object of the graft copolymer in which other components carried out graft copolymerization to the bottom of existence of a gum polymer, and the copolymer of (b-2).

[0034] the above-mentioned component (A) and the above-mentioned rate of a compounding ratio of (B) -- 1 - 99 weight section -- receiving -- (B) -- 99 - 1 weight section -- it is 90 - 5 weight section about (B) to 10 - 95 weight section preferably

[0035] As a (Component C) phosphoric ester system compound used by this invention, it is following formula (\*\* 9): [0036]

[Formula 9]



(Here, although R1, R2, R3, and R4 express a hydrogen atom or an organic machine, they remove independently the case of R1 = R2 = R3 = R4 = H, respectively.) X expresses the organic machine more than divalent, p is 0 or 1, q expresses one or more (30 or less [ for example, ]) integers, and r expresses zero or more integers. The phosphoric ester system compound shown is mentioned. However, it is not limited to this etc.

[0037] In the above-mentioned formula, the alkyl group which does not need to be even if replaced, a cycloalkyl machine, an aryl group, etc. are mentioned with an organic machine, for example. Moreover, when replaced, you may use as a substituent the bases (for example, aryl sulfonyl aryl group etc.) which joined together with the oxygen atom, the sulfur atom, the nitrogen atom, etc., and combined substituents, such as bases (for example, aryl alkoxyalkyl group etc.) which an alkyl group, an alkoxy group, an alkyl thio machine, a halogen, the aryl group, the aryloxy group, the aryl thio machine, the aryl-halide machine, etc. were mentioned as a substituent, and combined substituents, such as this, or this. Moreover, the basis more than divalent [ which is made or more except for one of the hydrogen atom combined with the carbon atom from the organic machine described above as the organic machine more than divalent ] is meant. For example, an alkylene machine and the thing preferably guided from a phenylene group (substitution) and polynuclear phenols, for example, bisphenols, are mentioned, and the relative position of two or more residual valences is arbitrary. As an especially desirable thing, they are a hydroquinone, a resorcinol, JIFENI roll methane, a JIFENI roll dimethylmethane, dihydroxydiphenyl, p, and p'. Dihydroxy diphenylsulfone, dihydroxy naphthalene, etc. are mentioned.

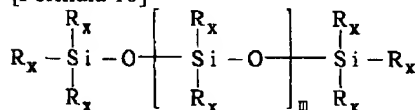
[0038] As an example of a concrete phosphoric ester system compound Trimethyl phosphate, triethyl phosphate, tributyl phosphate, Trioctylphosphate, tributoxyethyl phosphate, triphenyl phosphate, Tricresyl phosphate, cresyl phenyl phosphate, octyl diphenyl phosphate, Diisopropyl phenyl phosphate, tris (chloro ethyl) phosphate, Tris (dichloro propyl) phosphate, tris (chloropropyl) phosphate, Screw (2, 3-dibromopropyl) - 2 Three - Dichloro propyl phosphate, Tris (2, 3-dibromopropyl) phosphate and screw (chloropropyl) monochrome octyl phosphate, R1 -R4 An alkoxy \*\*\*\*\* methoxy, ethoxy \*\*\*\*\* propoxy, Or the bisphenol A screw phosphate which is a phenoxy (substitution), for example, a phenoxy, and a methyl (substitution) phenoxy preferably, Hydroquinone screw phosphate, resorcinol screw phosphate, trio KISHIBENZENTORI phosphate, etc. are mentioned, and they are triphenyl phosphate and various screw phosphate preferably.

[0039] the above-mentioned component (C) -- a total of 100 of a component (A) and (B) the weight section -- receiving -- 1 - 20 weight section -- 5-15 weight section addition is carried out preferably It is a book when there are few amounts of a component (C) than the above-mentioned range.

[0040] Next, in itself, the component (D) polyorganosiloxane used by this invention is well-known, for example, can be expressed with the following general formula (\*\* 10).

[0041]

[Formula 10]



(Rx is a hydrogen atom, an aromatic machine, an aliphatic machine, or an alicyclic machine independently among the

above-mentioned formula, respectively, and m is 0 or one or more integers)

Rx As an example, in the case of an aromatic machine Aryl-halide machines, such as aryl group; chlorophenyl machines, such as a phenyl group, a xylyl group, and a tolyl group; A phenylethyl machine, Aralkyl machines, such as a benzyl, are mentioned, and in being an aliphatic machine Alkyl groups, such as a methyl, ethyl, and a propyl group; A vinyl group, a propenyl machine, Alkenyl machines, such as a butenyl group; halo alkyl groups, such as cyano alkyl group; chlorobutyl machines, such as a cyano ethyl group and a cyano butyl, etc. are mentioned, and a cyclohexyl machine etc. is mentioned when it is an alicyclic machine. Rx You may differ, even if altogether the same. Rx It is preferably chosen from a methyl group, a phenyl group, and a vinyl group. The kneading object which kneads the thing which added a reactant functional group, for example, an epoxy group, the amino group, the carboxylic-acid machine, the carboxylate machine, the sulfhydryl group, the hydroxyl group, etc. to a part of polyorganosiloxane shown by the above-mentioned formula (\*\* 10), or the polyorganosiloxane shown by the above-mentioned formula (\*\* 10) with a polyolefine system resin etc., and is obtained can also be used as a component (D). Such a kneading object has an indication in JP,3-21611,A, JP,3-21612,A, JP,3-21613,A, etc. Moreover, the network structure to which siloxane combination was extended to three dimensions is taken, and the polysiloxane which the organic machine combined with the silicon atom, for example, a toss pearl etc., (a trademark, Toshiba Silicone, Inc. make) is contained in the component (D) in this invention.

[0042] a component (D) -- a total of 100 of a component (A) and (B) the weight section -- receiving -- 0.1 - 10 weight section -- 0.5 - 5 weight section use is carried out preferably If fewer than the above-mentioned range, an effect of the invention will not be demonstrated enough.

[0043] A dropping-inhibitor can be further included in the resin constituent of this invention. Also commercially the fluoridation polyolefine which can be used as such a dropping inhibitor can come to hand, or can also be manufactured by the well-known method. It is set in an aqueous medium, using for example, a free radical catalyst (for example, a sodium peroxydisulfate, a potassium, or ammonium). 100-1000psi It is the white solid-state obtained a pressure and by carrying out the polymerization of the tetrafluoroethylene under the temperature of 20 to 100 degree C preferably zero to 200 degree C. In detail, it is Brubaker's (Brubaker) U.S. \*\*\*\*\*. Please refer to a No. 2,393,967 specification. Although it is not indispensable, it is a comparatively big particle, for example, average grain size. It is desirable to use the resin in the state of the particle of 0.3 to 0.7 mm (mainly 0.5mm). This is better than the usual polytetrafluoroethylene powder which has the grain size of 0.05 to 0.5 mm. Especially a desirable reason has the matter of this comparatively big grain size in the inclination which it distributes easily in a polymer, and combines a polymer comrade, and makes fibrous material being shown. According to ASTM, this suitable poly tetrafluoro CHIREN is called Type 3, and may come to hand commercially as Teflon 6 (Teflon 6) from Du Pont (E. I. Dupont de Nemours and Company) in fact. Or it may receive commercially as Teflon 30J of Dupont-Mitsui Fluorochemicals. a fluoridation polyolefine -- component (A) the 100 weight sections -- receiving -- desirable -- 0.01 - 2 weight section -- more -- desirable -- 0.05-1.0 Weight section use is carried out.

[0044] In the resin constituent of this invention, unless the physical properties other than the above-mentioned component are spoiled Other additives of common use, for example, a pigment, it responds to the purpose. at the time of fabrication at the time of mixture of a resin A color, reinforcing agents (a glass fiber, carbon fiber, etc.), bulking agents (carbon black, a silica, titanium oxide, etc.), a heat-resistant agent, an oxidization degradation inhibitor, a weathering agent, lubricant, a release agent, a crystalline-nucleus agent, a plasticizer, a fluid improvement agent, an antistatic agent, etc. can be added.

[0045] There is especially no limit in the method for manufacturing the resin constituent of this invention, and the usual method can use it for satisfaction. However, generally melting alligation is desirable. Although use of a little solvent is also possible, generally it is unnecessary. Especially as equipment, an extruder, a Banbury mixer, a roller, a kneader, etc. can be mentioned as an example, and these are operated batch-wise or continuously. Especially the order of mixture of a component is not limited.

[0046]

[Example] The following examples explain this invention in more detail. In addition, the following components were used in the example.

Component (A) RS-PC: The 0.44K (product made from ENII) mol of copolymerization polycarbonate; 0.22K (Japan JII plastics incorporated company make) mol [ of bisphenol A ], 0.22K mol [ of resorcinols ], and diphenyl carbonate manufactured as follows was taught to the 1st tub type agitator (capacity of 250l.), and was fused at 140 degrees C. The obtained mixture was sent to the 2nd tub type agitator (capacity of 50l.) at the rate of the 0.16K/h mol by bisphenol A conversion, holding to this temperature. The temperature of the 2nd tub type agitator was held at 180 degrees C.

[0047] As a catalyst, time was adjusted and tetramethylammonium hydroxide was agitated here so that 0.00016-mol/h (1x10 -six-mol [ /mol ]-bisphenol A) addition of 0.04 mols/h and the sodium hydroxide might be carried out and the residence time might become for 30 minutes about them.

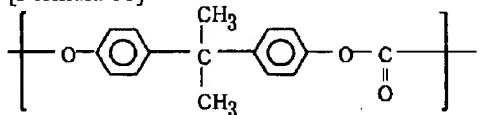
[0048] Next, this reaction mixture was sent to the 3rd tub type agitator (capacity of 50l.) at the rate of the 0.16K/h mol by bisphenol A conversion. The temperature of the 3rd tub type agitator was 210 degrees C, and the pressures were 200mmHg(s). Time was adjusted so that the residence time might become for 30 minutes, and it agitated, carrying out extraction removal of the phenol.

[0049] Next, this reaction mixture was sent to the 4th tub type agitator (capacity of 50l.) at the rate of the 0.16K/h mol by bisphenol A conversion. The temperature of the 4th tub type agitator was 240 degrees C, and the pressures were 15mmHg(s). Time was adjusted so that the residence time might become for 30 minutes, and it agitated, carrying out extraction removal of the phenol. The limiting viscosity [eta] of the reactant from which the reaction was obtained by becoming regular was 0.15 dl/g.

[0050] Next, the pressure up of this reactant was carried out with the gear pump, by bisphenol A conversion, at the rate of the 0.16K/h mol, it fed into the centrifugal type thin film evaporation machine, and the reaction was advanced. The temperature and the pressure of a thin film evaporation machine were controlled to 270 degrees C and 2mmHg(s), respectively. From the evaporation machine lower part, the reactant was sent into the 2 shaft horizontal-type churning polymerization tank (ratio-of-length-to-diameter=3, impeller rotation diameter 220mm, 80l. of content volume) controlled by the gear pump by 290 degrees C and 0.2mmHg(s) by bisphenol A conversion at the rate of the 0.16K/h mol (about 40kg / time), and carried out the polymerization to it in [ residence-time ] 30 minutes. The limiting viscosity [eta] of the product at this time was 0.49 dl/g. The product was a copolymerization polycarbonate which it has by the following formula (\*\* 11) and (\*\* 12) the mole ratio 50:50. Below, this is written as RS-PC.

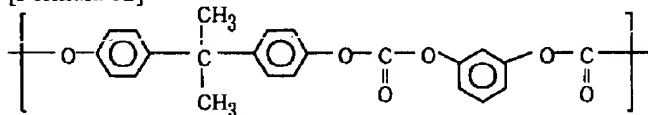
[0051]

[Formula 11]



[0052]

[Formula 12]



PC: The intrinsic-viscosity 0.50 dl/g (component B) b-1:ABS plastics and Trademark UX 050 (UBESA icon incorporated company make) which were measured at 25 degrees C among the polycarbonate (trademark; a Lexan, the Japan JII plastics incorporated company make) which is bisphenol A, and the methylene chloride

b-2: A SAN resin, trademark SR 30B (UBESA icon incorporated company make)

(Component C) CR733S: It is (D) TSF-437 by the trademark, phenyl resorcinol poly phosphate, and large 8 chemistry incorporated company production. : A trademark, the Toshiba Silicone, Inc. make, poly methylphenyl siloxane arbitration component Teflon 30J : A trademark, a polytetrafluoroethylene, the Dupont-Mitsui Fluorochemicals example 1 and the example 1 of comparison - 2 each component. It mixes at a rate (weight ratio) shown in Table 1, and they are 280 \*\* and 100rpm. It extruded with set-up 1 shaft extruder (65mm), and the pellet was created. Subsequently, this pellet was injection molded at setting temperature 280 \*\* and 80 degrees C of die temperatures. Izod impactive strength was measured about the obtained mold goods, and fire-resistant evaluation was performed. A result is shown in Table 1.

[0053] In addition, the evaluation examination of a resin constituent was performed as follows.

(1) Izod impactive strength (kg-cm/cm)

ASTM D 256 is followed and it is thickness. One eighth It measured an inch and with the notch.

(2) The test bar of fire-resistant sex-test UL94/V0 and VI and five VII examinations was examined by the thickness of 1/16 inch according to the test method shown in combustion test" for a Underwriters Laboratories INKOPRESHON bulletin 94" material classification (henceforth UL-94). By this test method, sample offering material is based on the result of five samples, and it is UL-94. It evaluated in the grade of either V-0, V-I and V-II. the criteria of V grade each about UL-94 -- an outline -- it is as follows

V-0: Don't fall the particle flame with which the average flame holding time after removing ignition flame is 5 or less seconds, and all samples light absorbent cotton.

V-I: Don't fall the particle flame with which the average flame holding time after removing ignition flame is 25 or less seconds, and all samples light absorbent cotton.

V-II: Fall the particle flame with which the average flame holding time after removing ignition flame is 25 or less seconds, and these samples light absorbent cotton.

[0054] Moreover, UL-94 have specified the purport which must not be classified into the grade, if all the test bar does not pass specific V grade. When not fulfilling this condition, the five test bar can give the grade of the one poorest-achieving test bar. For example, when the one test bar is classified into V-II, the class to all the five test bar etc. is V-II.

UL 94/5 -- Examination A (bar examination) was performed first V \*\*\*\*s (5 inch FURAMU test) In the rejected case, it judged with 5V rejection to Examination A. In success to Examination A next, Examination B (corner guard examination) was performed. In success to Examination B, it judged with 5VAs, and, in the rejected case, judged with 5VB to Examination B. In addition, even if it passes Examination B, in a rejected case, it is judged with 5V rejection by Examination A. In addition, also in the examination [ which ], thickness was 2.5mm.

According to CAS examination CSA specification C22.2 No.0.6-M1982, Examination A (127 mm frame examination) was performed about the test piece with a thickness of 2.5mm.

[0055]

[Table 1]

表 1

	実施例 1	比較例 1	比較例 2
成分 (重量部)			
P C	-	69	-
R S - P C	69	-	69
A B S	8	8	8
S A N	12	12	12
C R 7 3 3 S	11	11	11
T S F - 4 3 7	1.5	-	-
テフロン30J	0.3	0.3	0.3
アイゾット衝撃強度 (Kg・cm/cm)	70	68	67
難燃性試験			
UL94/V0, VI, VII試験	V0	V0	V0
UL94/5V 試験	5VA	5VB	5VB
CSA 試験	○	×	×

CSA O expresses success and, as for an examination, x expresses a rejection.

[0056]

[Effect of the Invention] Even if thinly fabricated by this invention, by it, fire retardancy can offer the remarkably excellent polycarbonate system resin constituent. Therefore, the resin constituent of this invention is very useful industrially.

---

[Translation done.]

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-196871

(43)Date of publication of application : 01.08.1995

(51)Int. Cl.

C08L 25/12  
C08K 5/521  
C08L 55/02  
C08L 69/00  
C08L 83/04

(21)Application number : 05-353530

(71)Applicant : NIPPON G I PLAST KK

(22)Date of filing : 28.12.1993

(72)Inventor : FUJIGUCHI TOMOHIDE  
SAITO AKIHIRO  
ITO HIDEYUKI

## (54) FLAME-RETARDANT RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a flame-retardant resin composition which can exhibit excellent flame retardancy even in the form of a thin molding by compounding a resin composition comprising a copolycarbonate comprising specified structural units or a combination thereof with a polycarbonate resin, a phosphoric ester compound and a polyorganosiloxane.

CONSTITUTION: The title composition comprises 100 pts.wt. copolycarbonate comprising structural units represented by formulas I and II (wherein R<sub>4</sub> and R<sub>5</sub> are each halogen or a monovalent hydrocarbon group (hereinbelow referred to as HC); B is a group of the formula: -(R<sub>1</sub>)-C(-R<sub>2</sub>)- [wherein R<sub>1</sub> and R<sub>2</sub> are each H or a monovalent HC], -C(=R<sub>3</sub>)- [wherein R<sub>3</sub> is a bivalent HC], -O-, -S-, -SO- or -SO<sub>2</sub>-; R<sub>6</sub> is 1-10C HC, a halogenated derivative thereof or halogen; and p, q and n are each an integer of 0-4) and having a content of structural units II of 2-90mol% based on the total amount of repeating units I and II or a combination thereof with a polycarbonate resin, 1-20 pts.wt. phosphoric ester compound, and 0.1-10 pts.wt. polyorganosiloxane.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

06.11.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

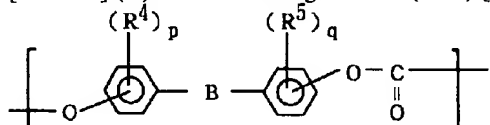
Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

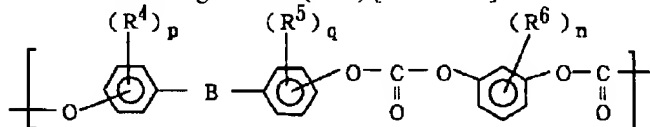
## CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) : The following formula (\*\* 1) [Formula 1]



: And the following formula (\*\* 2) [Formula 2]



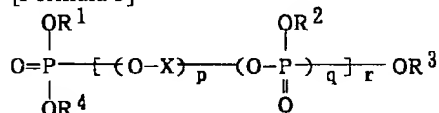
It is here, the inside of the above-mentioned formula, R4, and R5 -- respectively -- becoming independent -- a halogen atom or a monovalent hydrocarbon group -- it is -- B -(R1-) C(-R2)- [-- R1 And] whose R2 is a hydrogen atom or a univalent hydrocarbon group independently, respectively, - C(=R3)- [R3 is Divalent Hydrocarbon Group Here], - It is O-, -S-, -SO-, or -SO2-, and is R6. It is Hydrocarbon Group, Its Halogenide, or Halogen Atom of Carbon Numbers 1-10. It has the structural unit shown. p, q, and n -- respectively -- becoming independent -- the integer of 0-4 -- it is -- and the amount of the structural unit of the above (\*\* 2) -- and (\*\* 1) (\*\* 2) a copolymerization polycarbonate, or this and the polycarbonate system resin which occupy 2-90-mol% of the total quantity of a structural unit 1 - 99 weight section -- They are (B) (b-1) and (a) to a row. A gum polymer and (b) An aromatic vinyl monomer component and (c) A vinylcyanide monomer component The copolymer included as a constituent of a copolymer, and/or (b-2) (b) An aromatic vinyl monomer component and (c) A vinylcyanide monomer component It is (C) phosphoric ester system compound to a total of 100 weights sections of 99 - 1 weight section implication, (A), and (B) about the copolymer included as a constituent of a copolymer. 1 - 20 weight section and (D) polyorganosiloxane Flame-retardant-resin constituent containing 0.1 - 10 weight section.

[Claim 2] It sets for a component (A) and a formula (\*\* 1) and (\*\* 2) inner B are -(R1-) C(-R2)-. (R1 and R2 are the above and homonymy) Resin constituent according to claim 1 shown.

[Claim 3] The resin constituent according to claim 1 or 2 which (b-1) is chosen from ABS plastics, the AES resin, a ACS resin, and an acrylonitrile acrylic styrene resin in a component (B), and (b-2) is a SAN resin.

[Claim 4] (Component C) phosphoric ester system compound is the following formula (\*\* 3).

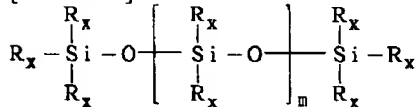
[Formula 3]



(Here, although R1, R2, R3, and R4 express a hydrogen atom or an organic machine, they remove independently the case of R1 = R2 = R3 = R4 = H, respectively.) X expresses the organic machine more than divalent, p is 0 or 1, q expresses one or more integers and r expresses zero or more integers. Resin constituent of the claim 1-3 which is the compound shown given in any 1 term.

[Claim 5] A component (D) polyorganosiloxane is the following formula (\*\* 4).

[Formula 4]



It is the resin constituent of claims 1-4 given in any 1 term shown by (Rx is a hydrogen atom, an aromatic machine, an aliphatic machine, or an alicyclic machine independently among the above-mentioned formula, respectively, and m is 0 or one or more

integers).

[Claim 6] The resin constituent of the claim 1-5 which furthermore contains a dropping inhibitor given in any 1 term.

---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-196871

(43) 公開日 平成7年(1995)8月1日

(51) Int. Cl.*	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 25/12	LEC			
C 0 8 K 5/521	KGB			
C 0 8 L 55/02	LME			
69/00	LPP			
83/04	LR Y			

審査請求 未請求 請求項の数6 F D (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平5-353530

(22) 出願日 平成5年(1993)12月28日

(71) 出願人 390000103

日本シーイープラスチック株式会社  
東京都中央区日本橋浜町2丁目35番4号

(72) 発明者 藤口 智英

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘2-2 日本シーイープラスチック株式会社内

(72) 発明者 斉藤 明宏

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘2-2 日本シーイープラスチック株式会社内

(72) 発明者 糸井 秀行

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘2-2 日本シーイープラスチック株式会社内

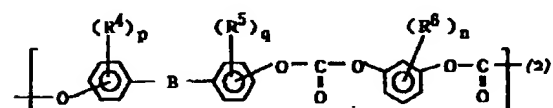
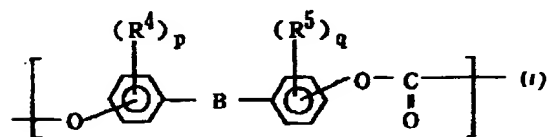
(74) 代理人 弁理士 松井 光夫

(54) 【発明の名称】 難燃性樹脂組成物

(57) 【要約】 (修正有)

【目的】 薄く成形されても著しく優れた難燃性を有するポリカーボネート系樹脂組成物を提供する。

【構成】 次式1、2で示される共重合ポリカーボネートまたはこれとポリカーボネート系樹脂を含む難燃性樹脂組成物。



(上記式中、 $\text{R}^4$  および  $\text{R}^5$  はそれぞれ独立して、ハロゲン原子または一価の炭化水素基であり、 $\text{B}$  は  $-(\text{R}^1)-\text{C}(\text{R}^2)-$  [ $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は水素原子または一価の炭化水素基]、 $-\text{C}(=\text{R}^3)-$  [ $\text{R}^3$  は二価の炭化水素基]、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{SO}-$  または

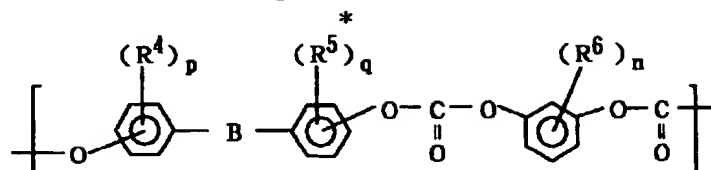
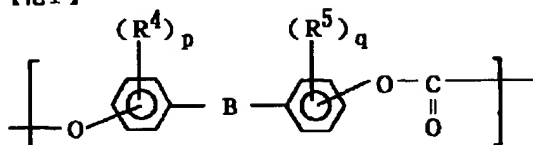
$\text{SO}_2-$  であり、 $\text{R}^6$  は炭素数1~10の炭化水素基もしくはそのハロゲン化物またはハロゲン原子であり、 $p$ 、 $q$  および  $n$  はそれぞれ独立して0~4の整数である)



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) 次式(化1):

【化1】



(上記式中、 $\text{R}^4$  および  $\text{R}^5$  はそれぞれ独立して、ハロゲン原子または一価の炭化水素基であり、 $\text{B}$  は  $-(\text{R}^1 -) \text{C}(-\text{R}^2) -$  [ここで、 $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  はそれぞれ独立して水素原子または一価の炭化水素基である]、 $-\text{C}(=\text{R}^3) -$  [ここで  $\text{R}^3$  は二価の炭化水素基である]、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{SO}-$  または  $-\text{SO}_2 -$  であり、 $\text{R}^6$  は炭素数1~10の炭化水素基もしくはそのハロゲン化物またはハロゲン原子であり、 $p$ 、 $q$  および  $n$  はそれぞれ独立して0~4の整数である)で示される構造単位を有し、かつ前記(化2)の構造単位の量は(化1)および(化2)の構造単位の合計量の2~90モル%を占めるところの共重合ポリカーボネートまたはこれとポリカーボネート系樹脂 1~99重量部、ならびに

(B) (b-1) (a) ゴム質重合体、(b) 芳香族ビニル単量体成分および(c) シアン化ビニル単量体成分を、共重合体の構成成分として含む共重合体、および/または (b-2) (b) 芳香族ビニル単量体成分および(c) シアン化ビニル単量体成分を、共重合体の構成成分として含む共重合体

を99~1重量部含み、かつ(A)および(B)の合計100重量部に対して、(C) リン酸エステル系化合物 1~20重量部および(D) ポリオルガノシロキサン 0.1~10重量部を含む難燃性樹脂組成物。

【請求項2】 成分(A)において、式(化1)および(化2)中の $\text{B}$ が  $-(\text{R}^1 -) \text{C}(-\text{R}^2) -$  ( $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は上記と同義である)で示される請求項1記載の樹脂組成物。

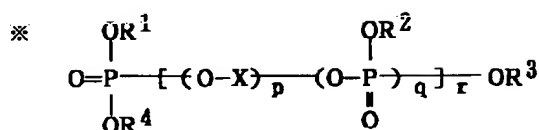
【請求項3】 成分(B)において、(b-1)がABS樹脂、AES樹脂、ACS樹脂およびAAS樹脂から選択され、かつ(b-2)がSAN樹脂である請求項1または2記載の樹脂組成物。

【請求項4】 成分(C) リン酸エステル系化合物が、次式(化3)

【化3】

\* および次式(化2):

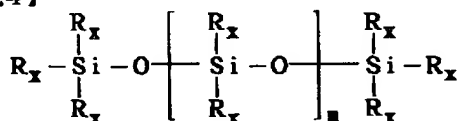
【化2】



(ここで、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$  および  $\text{R}^4$  は、それぞれ独立して、水素原子または有機基を表すが、 $\text{R}^1 = \text{R}^2 = \text{R}^3 = \text{R}^4 = \text{H}$  の場合を除く。 $\text{X}$  は2価以上の有機基を表し、 $p$  は0または1であり、 $q$  は1以上の整数、 $r$  は0以上の整数を表す。)で示される化合物である請求項1~3のいずれか1項記載の樹脂組成物。

【請求項5】 成分(D) ポリオルガノシロキサンが、次式(化4)

【化4】



(上記式中、 $\text{R}_x$  はそれぞれ独立して、水素原子、芳香族基、脂肪族基または脂環式基であり、 $m$  は0または1以上の整数である)で示される請求項1~4のいずれか1項記載の樹脂組成物。

【請求項6】 さらに滴下防止剤を含む請求項1~5のいずれか1項記載の樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、ポリカーボネート系の樹脂を含む難燃化された樹脂組成物に関する。

【0002】

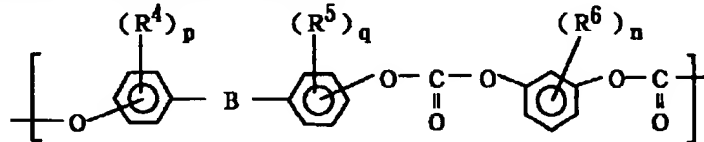
【従来の技術および発明が解決しようとする課題】 芳香族ポリカーボネート系樹脂はその優れた物性の故にエンジニアリングプラスチックとして多用されているが、難燃性が不足しているため、難燃性向上のために種々の試みがなされている。なかでも、芳香族ポリカーボネート樹脂およびABS系樹脂に、リン酸エステル系化合物を配合した組成物は難燃性が高い。すなわち、UL94燃焼試験V0、V1、V2において優れた成績をおさめ

※  
50 る。この難燃性評価試験は、長さ127 mm、幅12.7 mmの

バー状の試料を用いて行われる。ところが、このような樹脂組成物は、UL94の5V試験の角板試験においては、角板(152×152 mm)の厚さが2.8 mm未満であると、穴あきが起きて5VAの試験に不合格となる。同様に角板(100×150 mm)を用いるCSA規格C22.2 No.0.6-M1982の試験Aにおいても、試料の厚さが2.8 mm未満であると穴あき等のために不合格になる。

【0003】また芳香族ポリカーボネート樹脂とABS系樹脂とを含む樹脂組成物は、耐衝撃性および寸法精度等の物性が優れており、自動車の内装・外装をはじめ、OA機器のハウジング等に広く採用されている。ところが、特に各種機器のハウジング用途においては、近年における機器のコストダウンや軽量化の要請に答えるため、薄肉化指向が強まりつつある。したがって、厚さが薄いハウジングにおいて、UL94の5V試験およびCSA試験に合格する芳香族ポリカーボネート系の樹脂組成物が望まれている。

【0004】そこで本発明は、2.8 mmより薄い厚さに成\*



(上記式中、 $R^4$  および  $R^5$  はそれぞれ独立して、ハロゲン原子または一価の炭化水素基であり、Bは $-(R^1)-C(=R^2)-$  [ここで、 $R^1$  および  $R^2$  はそれぞれ独立して水素原子または一価の炭化水素基である]、 $-C(=R^3)-$  [ここで  $R^3$  は二価の炭化水素基である]、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO-$ または $-SO_2-$ であり、 $R^6$  は炭素数1~10の炭化水素基もしくはそのハロゲン化物またはハロゲン原子であり、p、q および n はそれぞれ独立して0~4の整数である)で示される構造単位を有し、かつ前記(化6)の構造単位の量は(化5)および(化6)の構造単位の合計量の2~90モル%を占めるところの共重合ポリカーボネートまたはこれとポリカーボネート系樹脂 1~99重量部、ならびに

(B) (b-1) (a) ゴム質重合体、(b) 芳香族ビニル単量体成分および(c) シアン化ビニル単量体成分を、共重合体の構成成分として含む共重合体、および/または (b-2) (b) 芳香族ビニル単量体成分および(c) シアン化ビニル単量体成分を、共重合体の構成成分として含む共重合体

を99~1重量部含み、かつ(A)および(B)の合計100重量部に対して、(C) リン酸エステル系化合物 1~20重量部および(D) ポリオルガノシロキサン 0.1~10重量部を含むことを特徴とする。

【0008】本発明においては、(A) および (B) の樹脂に、成分(C) および (D) を組合せたところに特徴があり、(C) および (D) のいずれか1つでも欠け※50

\*形されても、UL94の5V試験で5VA合格となり、またCSA試験に合格するような優れた難燃性を有するポリカーボネート系の樹脂組成物を提供することを目的とする。

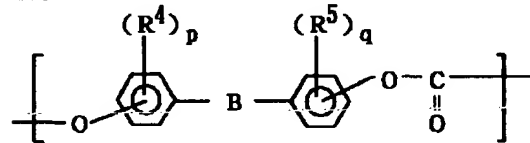
【0005】

【課題を解決するための手段】本発明の難燃性樹脂組成物は、

(A) 次式(化5)：

【0006】

【化5】



および次式(化6)：

【0007】

【化6】

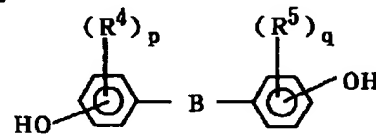
※と、薄肉角板でUL94の5V試験とCSA試験の両方に合格できない。

【0009】本発明においては、成分(A)は、上記した共重合ポリカーボネートまたはこれとポリカーボネート系樹脂である。

【0010】本発明で使用する共重合ポリカーボネートは、上記式(化5)および(化6)で示される構成単位を有することが必要である。まず、(化5)で示される構成単位はジフェノール成分およびカーボネート成分よりなる。ジフェノール成分を導入するために使用できるジフェノールを次式(化7)に示す。

【0011】

【化7】



上記式中、 $R^4$ 、 $R^5$ 、B、p および q は、先に示したのと同義である。

【0012】本発明において有効なジフェノールとしては、例えば、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(いわゆるビスフェノールA)、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)オクタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-1-メチルフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ヒ

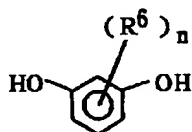
ドロキシセーブチルフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシセーブプロモフェニル)プロパンなどのビス(ヒドロキシアリール)アルカン類; 1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロペンタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサンなどのビス(ヒドロキシアリール)シクロアルカン類; 4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルエーテルなどのジヒドロキシアリールエーテル類; 4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルスルフィドなどのジヒドロキシジアリールスルフィド類; 4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルスルホキシドなどのジヒドロキシジアリールスルホキシド類; 4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジメチルジフェニルスルホンなどのジヒドロキシジアリールスルホン類などが挙げられるが、これらに限定されない。これらを1種または2種以上組合せて使用することができる。これらのうちでは、特に2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンが好ましい。

【0013】またカーボネート成分を導入するための前駆物質としては、例えばジフェニルカーボネート、ジトリールカーボネート、ビス(クロロフェニル)カーボネート、 $\alpha$ -クレジルカーボネート、ジナフチルカーボネート、ビス(ジフェニル)カーボネート、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジブチルカーボネート、ジシクロヘキシルカーボネートなどの炭酸ジエステル、およびホスゲンなどのハロゲン化カルボニル化合物等が挙げられる。これらを1種または2種以上組合せて使用することができる。特にジフェニルカーボネートが好ましい。

【0014】次に、上記式(化6)で示される構造単位は、ジフェノール成分、レゾルシンおよび/または置換レゾルシン成分ならびにカーボネート成分から成る。ジフェノール成分の導入については、上記したと同様のジフェノールを使用できる。またカーボネート成分としては、上記した炭酸ジエステルまたはホスゲンを使用できる。レゾルシンおよび/または置換レゾルシン成分の導入のためには、次式(化8)：

【0015】

【化8】



(ここで、 $R^6$  および  $n$  は上記と同義である)で示される化合物を1種または2種以上組合せて使用することができる。このような化合物としては、例えばレゾルシン、および3-メチルレゾルシン、3-エチルレゾルシン、3-プロピルレゾルシン、3-ブチルレゾルシン、3-セブチ

ルレゾルシン、3-フェニルレゾルシン、3-クミルレゾルシン、2,3,4,6-テトラフルオロレゾルシン、2,3,4,6-テトラプロモレゾルシンなどの置換レゾルシンが挙げられる。これらのうち特にレゾルシンが好ましい。

【0016】共重合ポリカーボネートは、(化5)(化6)で示される上記した2種の構成単位を次の割合で有している。すなわち、(化6)で示される構成単位の量が、(化5)および(化6)の合計量の2~90モル%、好ましくは2~40モル%である。(化6)の量が2モル%より少ないとガラス転移温度( $T_g$ )の低下が不十分であるので、流動性の改良効果がみられない。また、90モル%より多いと従来のポリカーボネートと同等の優れた物性、例えば機械的強度、耐熱性等が得られない。

【0017】共重合ポリカーボネートの重量平均分子量は、通常10,000~100,000、好ましくは18,000~40,000である。ここでいう重量平均分子量とは、ポリカーボネート用に補正されたポリスチレンを用いて、GPC(ゲル浸透クロマトグラフィー)によって測定されたものである。(また、メチレンクロリド中、25℃で測定した固有粘度が、0.35~0.65 dl/gであるものが好ましい。)共重合ポリカーボネートは、公知のポリカーボネートの製造方法、例えばホスゲンを用いる界面重合法、溶融重合法等によって製造できる。特に溶融重合法は毒性物質であるホスゲンや塩化メチレン等を用いないので、環境衛生上好ましい。

【0018】溶融重合反応の際の温度、圧力等の条件は任意であり、公知の慣用の条件を用いることができる。具体的には、好ましくは80~250℃、より好ましくは100~230℃、特に好ましくは120~190℃の温度で、好ましくは0~5時間、より好ましくは0~4時間、特に好ましくは0~3時間、常圧下で、ジフェノールおよび上記式(化8)で示される化合物と炭酸ジエステルとを反応させる。次いで、反応系を減圧にしながら反応温度を高めて、ジフェノールおよび上記式(化8)で示される化合物と炭酸ジエステルとの反応を行い、最終的には5mmHg以下、より好ましくは1mmHg以下の減圧下で240~320℃の温度で、ジフェノールおよび上記式(化8)で示される化合物と、炭酸ジエステルとの反応を行うのが好ましい。

【0019】上記のような重縮合反応は、連続式で行っても良く、バッチ式で行っても良い。また、上記反応を行う際に使用する反応装置は、槽型であっても、管型であっても、塔型であっても良い。

【0020】またこの溶融重合法によれば、得られる共重合ポリカーボネートにおける構造単位(化6)が(化5)および(化6)の合計の90モル%を超えるような割合で、すなわちレゾルシンおよび/または置換レゾルシンを、ジフェノール100モルに対して、90モルを超えるような量で使用しても、他の方法、例えば界面重

合法等に比べて、色相、耐水性、耐熱性の優れた共重合ポリカーボネートが得られる。

【0021】また、共重合ポリカーボネートは、その末端がフェノールであっても十分な耐衝撃強度を有するが、*p*-*tert*-ブチルフェノール、イソノルフェノール、イソオクチルフェノール、 $\blacksquare$ または $\square$ -*p*-ミルフェノール（好ましくは $\square$ -*p*-ミルフェノール）、クロマニル化合物、例えばクロマンのような、よりかさ高い末端基を導入すると、より低温衝撃性が優れた共重合ポリカーボネートを得ることができる。

【0022】成分(A)は、上記の共重合ポリカーボネートと共に任意的に、ポリカーボネート系樹脂を含むことができる。本発明において使用されるポリカーボネート系樹脂は、公知のホスゲン法または溶融法により作られた芳香族ポリカーボネートである（例えば特開昭63-215763号公報および特開平2-124934号公報参照）。

【0023】成分(A)が共重合ポリカーボネートおよびポリカーボネート系樹脂の両方を含む場合には、両者の配合比率は任意である。

【0024】次に成分(B)について述べる。(B)成分は、(b-1)および/または(b-2)である。まず、(b-1)は、(a)ゴム質重合体、(b)芳香族ビニル単量体成分および(c)シアン化ビニル単量体成分を含む共重合体である。

【0025】本発明で使用される(a)ゴム質重合体としては、ポリブタジエン、ポリイソプレン、スチレン-ブタジエンのランダム共重合体およびブロック共重合体、該ブロック共重合体の水素添加物、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、ブタジエン-イソプレン共重合体などのジエン系ゴム、エチレン-プロピレンのランダム共重合体およびブロック共重合体、エチレン-ブテンのランダム共重合体およびブロック共重合体、エチレンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、エチレン-メタクリレート、エチレン-ブチルアクリレートなどのエチレン-不飽和カルボン酸エステルとの共重合体、アクリル酸エステル-ブタジエン共重合体、例えばブチルアクリレート-ブタジエン共重合体などのアクリル系弾性重合体、エチレン-酢酸ビニルなどのエチレンと脂肪酸ビニルとの共重合体、エチレン-プロピレン-エチリデンノルボルネン共重合体、エチレン-プロピレン-ヘキサジエン共重合体などのエチレン-プロピレン非共役ジエンターポリマー、ブチレン-イソプレン共重合体、塩素化ポリエチレンなどが挙げられ、これらを1種または2種以上で使用する。好ましいゴム質重合体としてはエチレン-プロピレンゴム、エチレン-プロピレン非共役ジエンターポリマー、ジエン系ゴムおよびアクリル系弾性重合体であり、特に好ましくはポリブタジエンおよびスチレン-ブタジエン共重合体であり、このスチレン-ブタジエン共重合体中のスチレン含有率は50重量%以下であることが好ましい。

【0026】本発明で使用される(b)シアン化ビニル単量体成分としては、例えばアクリロニトリル、メタクリロニトリル等を挙げることができ、これらを1種または2種以上使用する。

【0027】本発明で使用される(c)芳香族ビニル単量体成分としては、例えばスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、*o*-,  $\blacksquare$ もしくは $\square$ -メチルスチレン、ビニルキシレン、モノクロロスチレン、ジクロロスチレン、モノプロモスチレン、ジプロモスチレン、フルオロスチレン、*p*-*tert*-ブチルスチレン、エチルスチレン、ビニルナフタレン等を挙げることができ、これらを1種または2種以上使用する。好ましくはスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレンである。

【0028】本発明における成分(B)の(b-1)には、上記の成分(a)、(b)および(c)の他に、(d)これらの成分と共重合可能な単量体を本発明の目的を損なわない範囲で使用する事ができる。そのような共重合可能な単量体としては、アクリル酸、メタクリル酸等の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、2-エチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート等の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸エステル類；無水マレイン酸、無水イタコン酸等の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和ジカルボン酸無水物類；マレイミド、*N*-メチルマレイミド、*N*-エチルマレイミド、*N*-フェニルマレイミド、*N*-*o*-クロロフェニルマレイミド等の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和ジカルボン酸のイミド化合物類；等を挙げることができ、これらの単量体は1種または2種以上で使用される。

【0029】成分(b-1)において、各成分(a)、(b)および(c)の組成比は特に制限はなく、用途に応じて各成分が配合される。

【0030】成分(b-1)の共重合体としては、(a)ゴム質重合体の存在下にその他の成分がグラフト共重合したグラフト共重合体等が好ましく、さらに好ましくはABS樹脂(アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体)、AES樹脂(アクリロニトリル-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体)、ACS樹脂(アクリロニトリル-塩素化ポリエチレン-スチレン共重合体)、AAS樹脂(アクリロニトリル-アクリル系弾性重合体-スチレン共重合体)である。

【0031】成分(b-1)の共重合体の製造法に関しては特に制限はなく、塊状重合、溶液重合、塊状懸濁重合、懸濁重合、乳化重合など通常公知の方法が用いられる。また、別々に共重合した樹脂をブレンドすることによって成分(b-1)を得ることも可能である。

【0032】次に、成分(B)の(b-2)は、(b)芳香族ビニル単量体成分および(c)シアン化ビニル単量体成分を含む共重合体である。これらの具体例としては、

50 上記の(b-1)において(b)および(c)として示した

ものが挙げられ、これらの組成比は特に制限されず、用途に応じて選択される。好ましい(b-2)としては、SAN樹脂(スチレン-アクリロニトリル共重合体)である。また、成分(b-2)の共重合体の製造法についても、上記の(b-1)と同様の方法が使用できる。

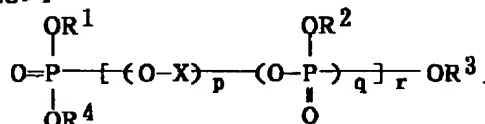
【0033】好ましい成分(B)としては、(a)ゴム質重合体の存在下にその他の成分がグラフト共重合したグラフト共重合体と(b-2)の共重合体とのブレンド物である。

【0034】上記した成分(A)および(B)の配合比率は、(A)1~99重量部に対して(B)を99~1重量部、好ましくは(A)10~95重量部に対して(B)を90~5重量部である。

【0035】本発明で使用する成分(C)リン酸エステル系化合物としては、次式(化9)：

【0036】

【化9】



(ここで、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>およびR<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素原子または有機基を表すが、R<sup>1</sup>=R<sup>2</sup>=R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=Hの場合を除く。Xは2価以上の有機基を表し、pは0または1であり、qは1以上、例えば30以下の整数、rは0以上の整数を表す。)で示されるリン酸エステル系化合物が挙げられる。しかし、これ等に限定されるものではない。

【0037】上記式において、有機基とはたとえば、置換されていてもいなくてもよいアルキル基、シクロアルキル基、アリール基等が挙げられる。また、置換されている場合、置換基としては例えばアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ハロゲン、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、ハロゲン化アリール基等が挙げられ、またこれ等の置換基を組合せた基(例えばアリールアルコキシアルキル基等)またはこれ等の置換基を酸素原子、イオウ原子、窒素原子等により結合して組合せた基(例えば、アリールスルホニルアリール基等)を置換基として用いてもよい。また、2価以上の有機基とは上記した有機基から、炭素原子に結合している水素原子の1個以上を除いてできる2価以上の基を意味する。例えばアルキレン基、および好ましくは(置換)フェニレン基、多核フェノール類例えばビスフェノール類から誘導されるものが挙げられ、2以上の遊離原子価の相対的位置は任意である。特に好ましいものとして、ヒドロキノン、レゾルシノール、ジフェニロールメタン、ジフェニロールジメチルメタン、ジヒドロキシジフェニル、p,p'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、ジヒドロキシナフタレン等が挙げられる。

【0038】具体的なリン酸エステル系化合物の例とし

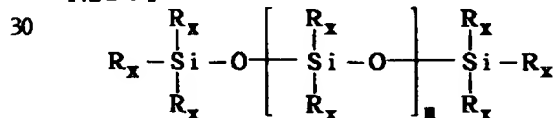
ては、トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリオクチルホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジルフェニルホスフェート、オクチルジフェニルホスフェート、ジイソプロピルフェニルホスフェート、トリス(クロロエチル)ホスフェート、トリス(ジクロロプロピル)ホスフェート、トリス(クロロプロピル)ホスフェート、ビス(2,3-ジブロモプロピル)-2,3-ジクロロプロピルホスフェート、トリス(2,3-ジブロモプロピル)ホスフェートおよびビス(クロロプロピル)モノオクチルホスフェート、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>がアルコキシ例えばメトキシ、エトキシおよびプロポキシ、または好ましくは(置換)フェノキシ例えばフェノキシ、メチル(置換)フェノキシであるところのビスフェノールAビスホスフェート、ヒドロキノンビスホスフェート、レゾルシンビスホスフェート、トリオキシベンゼントリホスフェート等が挙げられ、好ましくはトリフェニルホスフェートおよび各種ビスホスフェートである。

20 【0039】上記の成分(C)は、成分(A)および(B)の合計100重量部に対して1~20重量部、好ましくは5~15重量部添加する。成分(C)の量が上記の範囲より少ないと本発明の効果が十分発揮されず、上記の範囲より多いと耐熱性が損なわれる。

【0040】次に、本発明で使用する成分(D)ポリオルガノシロキサンは、それ自体は公知であり、例えば次の一般式(化10)で表すことができる。

【0041】

【化10】



(上記式中、R<sub>x</sub>はそれぞれ独立して、水素原子、芳香族基、脂肪族基または脂環式基であり、mは0または1以上の整数である)

R<sub>x</sub>の具体例としては、芳香族基の場合には、フェニル基、キシリル基、トリル基等のアリール基；クロロフェニル基等のハロゲン化アリール基；フェニルエチル基、ベンジル基等のアラルキル基が挙げられ、脂肪族基の場合には、メチル、エチル、プロピル基等のアルキル基；ビニル基、プロペニル基、ブテニル基等のアルケニル基；シアノエチル基、シアノブチル基等のシアノアルキル基；クロロブチル基等のハロアルキル基等が挙げられ、脂環式基の場合にはシクロヘキシル基等が挙げられる。R<sub>x</sub>は、すべて同じであっても、異なってもよい。R<sub>x</sub>は好ましくはメチル基、フェニル基およびビニル基から選択される。上記式(化10)で示されるポリオルガノシロキサンの一部に、反応性の官能基、例えばエポキシ基、アミノ基、カルボン酸基、カルボン酸エス

テル基、メルカプト基、水酸基等を付加したもの、あるいは上記式(化10)で示されるポリオルガノシロキサンをポリオレフィン系樹脂などと混練して得られる混練物も、成分(D)として使用できる。このような混練物は、例えば特開平3-21611号公報、特開平3-21612号公報、特開平3-21613号公報などに開示がある。また、シロキサン結合が三次元にのびた網状構造をとり、ケイ素原子に有機基が結合したポリシロキサン、例えばトスパール(商標、東芝シリコン株式会社製)なども本発明における成分(D)に含まれる。

【0042】成分(D)は、成分(A)および(B)の合計100重量部に対して0.1~10重量部、好ましくは0.5~5重量部使用する。上記の範囲より少ないと発明の効果が十分発揮されない。

【0043】本発明の樹脂組成物にはさらに、滴下防止剤を含むことができる。そのような滴下防止剤として使用することができるフッ素化ポリオレフィン、商業的にも入手できるし、あるいは公知の方法によって製造することもできる。それは、たとえば、遊離基触媒(たとえばペルオキシ二硫酸ナトリウム、カリウムまたはアンモニウム)を使用しながら水性媒質中において100~1000psiの圧力および0~200℃好ましくは20~100℃の温度下でテトラフルオロエチレンを重合させることによって得られる白色の固体である。詳しくは、ブルベーカー(Brubaker)の米国特許第2,393,967号明細書を参照されたい。不可欠ではないが、比較的大きな粒子たとえば平均粒度0.3~0.7 $\mu$ m(主として0.5 $\mu$ m)の粒子の状態にある樹脂を使用することが好ましい。これは0.05~0.5 $\mu$ mの粒度を有する通常のポリテトラフルオロエチレン粉末よりも良好である。かかる比較的大きな粒度の物質が特に好ましい理由は、それが重合体中に容易に分散しかつ重合体同志を結合して繊維状材料を作る傾向を示すことにある。かかる好適なポリテトラフルオロエチレンはASTMによればタイプ3と呼ばれるもので、実際にはデュポン社(E.I. DuPont de Nemours and Company)からテフロン6(Teflon 6)として商業的に入手し得る。あるいは、三井デュポンフロケミカル社のテフロン30Jとして商業的に入手し得る。フッ素化ポリオレフィンは、成分(A)100重量部に対して、好ましくは0.01~2重量部、より好ましくは0.05~1.0重量部使用する。

【0044】本発明の樹脂組成物には、上記の成分の他に、その物性を損なわない限りにおいて、その目的に応じて樹脂の混合時、成形時に、慣用の他の添加剤、例えば顔料、染料、補強剤(ガラス繊維、炭素繊維など)、充填剤(カーボンブラック、シリカ、酸化チタンなど)、耐熱剤、酸化劣化防止剤、耐候剤、滑剤、離型剤、結晶核剤、可塑剤、流動性改良剤、帯電防止剤等を添加することができる。

【0045】本発明の樹脂組成物を製造するための方法に特に制限はなく、通常の方法が満足に使用できる。し

かしながら一般に熔融混合法が望ましい。少量の溶剤の使用も可能であるが、一般に必要な。装置としては特に押出機、パンバリーミキサー、ローラー、ニーダー等を例として挙げることができ、これらを回分的または連続的に運転する。成分の混合順は特に限定されない。

【0046】

【実施例】以下の実施例により、本発明をさらに詳しく説明する。なお、実施例においては以下の成分を使用した。

#### 10 成分(A)

RS-PC: 以下のようにして製造した共重合ポリカーボネート; ビスフェノールA(日本ゼイイープラスチック株式会社製)0.22キロモル、レゾルシン0.22キロモルおよびジフェニルカーボネート(エニィ社製)0.44キロモルを、第1の槽型攪拌機(容量250リットル)に仕込み、140℃で溶融した。この温度に保持しながら、得られた混合物を、ビスフェノールA換算で毎時0.16キロモルの速度で、第2の槽型攪拌機(容量50リットル)に送液した。第2の槽型攪拌機の温度は180℃に保持した。

【0047】ここに触媒として、テトラメチルアンモニウムヒドロキシドを毎時0.04モルおよび水酸化ナトリウムを毎時0.00016モル( $1 \times 10^{-6}$ モル/モル-ビスフェノールA)添加し、滞留時間が30分間となるように時間を調整し、攪拌した。

【0048】次に、この反応液を、ビスフェノールA換算で毎時0.16キロモルの速度で、第3の槽型攪拌機(容量50リットル)に送液した。第3の槽型攪拌機の温度は210℃、圧力は200mmHgであった。滞留時間が30分間となるように時間を調整し、フェノールを抽出除去しながら攪拌した。

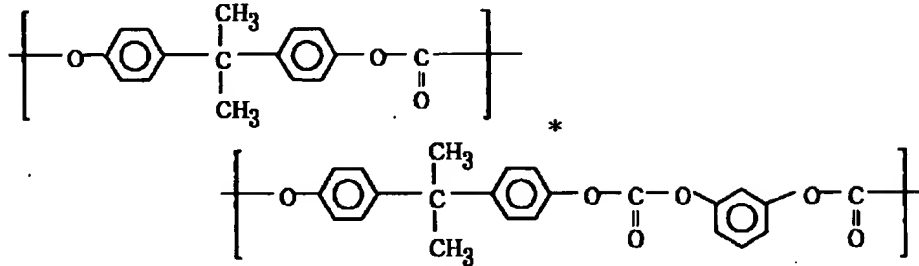
【0049】次に、この反応液を、ビスフェノールA換算で毎時0.16キロモルの速度で、第4の槽型攪拌機(容量50リットル)に送液した。第4の槽型攪拌機の温度は240℃、圧力は15mmHgであった。滞留時間が30分間となるように時間を調整し、フェノールを抽出除去しながら攪拌した。反応が定常になって得られた反応物の極限粘度 $[\eta]$ は0.15dl/gであった。

【0050】次に、この反応物をギアポンプで昇圧し、ビスフェノールA換算で毎時0.16キロモルの速度で、遠心式薄膜蒸発機に送入し、反応を進めた。薄膜蒸発機の温度および圧力はそれぞれ、270℃および2mmHgに制御した。反応物を、蒸発機下部よりギアポンプにて、290℃および0.2mmHgに制御された二軸横型攪拌重合槽(L/D=3、攪拌翼回転直径220mm、内容積80リットル)に、ビスフェノールA換算で毎時0.16キロモルの速度(約40kg/時間)で送り込み、滞留時間30分間にて重合させた。このときの生成物の極限粘度 $[\eta]$ は0.49dl/gであった。生成物は、次式(化11)および(化12)をモル比50:50で

有する共重合ポリカーボネートであった。以下ではこれをRS-PCと略記する。

【0051】

【化11】



PC：ビスフェノールAのポリカーボネート（商標；レキサン、日本ゼーイープラス株式会社製）、塩化メチレン中、25℃で測定した固有粘度0.50dl/g  
成分（B）

b-1：ABS樹脂、商標UX 050（ウベサイコン株式会社製）

b-2：SAN樹脂、商標SR 30B（ウベサイコン株式会社製）

成分（C）

CR733S：商標、フェニルレゾルシンポリホスフェート、大八化学株式会社製

成分（D）

TSF-437：商標、東芝シリコン株式会社製、ポリメチルフェニルシロキサン

任意成分

テフロン30J：商標、ポリテトラフルオロエチレン、三井デュボンフロロケミカル社製

実施例1および比較例1～2

各成分を表1に示す割合（重量比）で混合し、280℃、100rpmに設定した1軸押出機（65mm）で押し出し、ペレットを作成した。次いで、このペレットを、設定温度280℃、金型温度80℃で射出成形した。得られた成形品についてアイゾット衝撃強度を測定し、難燃性の評価を行った。結果を表1に示す。

【0053】なお、樹脂組成物の評価試験は、以下のように行った。

(1) アイゾット衝撃強度 (Kg-cm/cm)

ASTM D 256に従って、厚み 1/8 インチ、ノッチ付で測定した。

(2) 難燃性試験

UL94/V0, VI, VII試験

5個の試験棒をアンダーライターズラボラトリーズインコーポレーションのプレチン94”材料分類のための燃焼試験”（以下、UL-94という）に示される試験方法にしたがって、厚み1/16インチで試験した。この試験※

\*【0052】

【化12】

\*

※方法により、供試材料を、5個の試料の結果に基づいてUL-94 V-0、V-IおよびV-IIのいずれかの等級に評価した。UL-94についての各Vの等級の基準は概略次の通りである。

V-0：点火炎を取り除いた後の平均火炎保持時間が5秒以下であり、かつ全試料とも脱脂綿に着火する微粒炎を落下しない。

20 V-I：点火炎を取り除いた後の平均火炎保持時間が25秒以下であり、かつ全試料とも脱脂綿に着火する微粒炎を落下しない。

V-II：点火炎を取り除いた後の平均火炎保持時間が25秒以下であり、かつこれらの試料が脱脂綿に着火する微粒炎を落下する。

【0054】また、UL-94は全試験棒が特定のV等級に合格しなければ、その等級に分類してはならない旨を規定している。この条件を満たさない場合には、その5個の試験棒は最も成績の悪い1個の試験棒の等級を与えられる。例えば1個の試験棒がV-IIに分類された場合には、5個の全試験棒に対する等級はV-Iである。

UL94/5V試験（5インチフラムテスト）

まず試験A（バー試験）を行った。試験Aに不合格の場合は5V不合格と判定した。試験Aに合格の場合には次に、試験B（角板試験）を行った。試験Bに合格の場合は5VAと判定し、試験Bに不合格の場合は5VBと判定した。なお、試験Bに合格しても試験Aに不合格の場合は5V不合格と判定される。なお、いずれの試験においても、厚みは2.5mmであった。

CAS試験

CSA規格C22.2 No.0.6 - M1982にしたがって、厚み2.5mmの試験片について、試験A（127mmフレーム試験）を行った。

【0055】

【表1】

表 1

	実施例 1	比較例 1	比較例 2
成分 (重量部)			
PC	-	69	-
RS-PC	69	-	69
ABS	8	8	8
SAN	12	12	12
CR733S	11	11	11
TSP-437	1.5	-	-
テフロン30J	0.3	0.3	0.3
アイゾット衝撃強度 (Kg・cm/cm)	70	68	67
難燃性試験			
UL94/V0, VI, VII試験	V0	V0	V0
UL94/5V 試験	5VA	5VB	5VB
CSA 試験	○	×	×

CSA 試験は、○が合格、×が不合格を表す。

【0056】

【発明の効果】本発明により、薄く成形されても難燃性\*

\*が著しく優れたポリカーボネート系樹脂組成物を提供することができる。よって、本発明の樹脂組成物は、工業的に非常に有用である。